

51

Int. Cl. 2:

C 09 B 25/00

19 BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

C 09 B 57/00

DEUTSCHES



PATENTAMT

Behörden Eigentum

DT 27 06 872 A 1

11

# Offenlegungsschrift 27 06 872

21

Aktenzeichen:

P 27 06 872.0-43

22

Anmeldetag:

17. 2. 77

23

Offenlegungstag:

25. 8. 77

30

Unionspriorität:

32 33 31

17. 2. 76 Japan 15455-76

25. 8. 76 Japan 74394-76

28. 9. 76 Japan 115370-76

7. 10. 76 Japan 119878-76

25. 10. 76 Japan 127343-76

54

Bezeichnung:

Chinolinderivate, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung

71

Anmelder:

Teijin Ltd., Osaka (Japan)

74

Vertreter:

Henkel, G., Dr.phil.; Kern, R. M., Dipl.-Ing.; Feiler, L., Dr.rer.nat.;  
Hänzel, W., Dipl.-Ing.; Pat.-Anwälte, 8000 München

72

Erfinder:

Shimada, Keizo, Hino, Tokio; Harada, Toshiaki; Koga, Masahiro;  
Iwakuni, Yamaguchi (Japan)

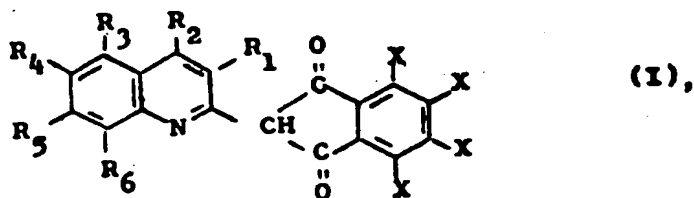
Prüfungsantrag gem. § 28 b PatG ist gestellt

DT 27 06 872 A 1

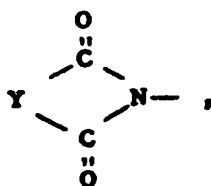
2011-01-11 14:11:30

Patentansprüche

## 1. Verbindung der Formel



in der  $R_1$  ein Wasserstoffatom oder eine niedere Alkylgruppe,  $R_2$  und  $R_5$  unabhängig voneinander ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom oder eine niedere Alkylgruppe, eine der Gruppen  $R_3$  und  $R_4$  eine Imidogruppe der Formel



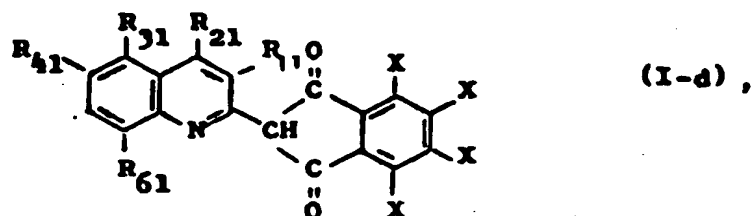
in der Y eine 1,2-Phenyl-, 1,2-Naphthyl-, 2,3-Naphthyl- oder 1,8-Naphthylengruppe, gegebenenfalls mit wenigstens einem Substituenten, und die andere ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom oder eine niedere Alkylgruppe bedeutet,  $R_6$  ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom, eine niedere Alkylgruppe oder eine niedere Alkoxygruppe und X ein Halogenatom bedeuten, mit der Maßgabe, daß, wenn  $R_3$  die Imidogruppe bedeutet,  $R_2$  ein Wasserstoff- oder Halogenatom bedeutet.

2. Verbindung nach Anspruch 1, in der  $R_3$  die Imidogruppe ist.
3. Verbindung nach Anspruch 2, in der Y in der Imidogruppe 1 bis 6 Halogenatome als Substituenten enthält.

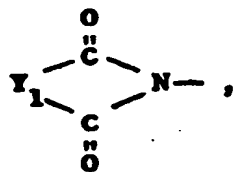
709834/0975

ORIGINAL INSPECTED

4. Verbindung nach Anspruch 2, in der Y eine gegebenenfalls durch 1 bis 4 Halogenatome substituierte 1,2-Phenylengruppe ist.
5. Verbindung nach einem der Ansprüche 1 bis 4, in der R<sub>6</sub> ein Chlor- oder Bromatom ist.
6. Verbindung nach Anspruch 1 der Formel



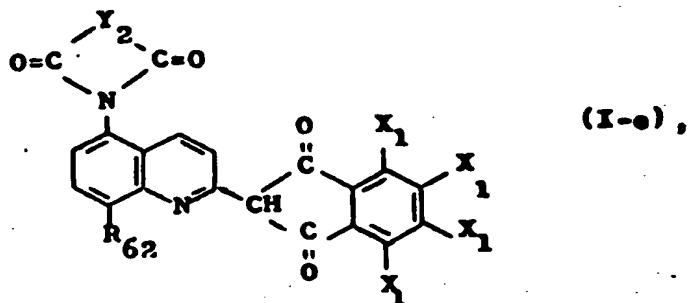
in der R<sub>11</sub> und R<sub>21</sub> unabhängig voneinander ein Wasserstoffatom oder eine niedere Alkylgruppe, eine der Gruppen R<sub>31</sub> und R<sub>41</sub> eine Imidogruppe der Formel



in der Y<sub>1</sub> eine 1,2-Phenyl-, 1,2-Naphthyl-, 2,3-Naphthyl- oder 1,8-Naphthylengruppe, gegebenenfalls durch 1 bis 6, insbesondere 1 bis 4 Halogenatome substituiert, bedeutet, und die andere ein Wasserstoffatom, R<sub>61</sub> ein Halogenatom, eine niedere Alkylgruppe oder eine niedere Alkoxygruppe und X ein Halogenatom bedeuten, mit der Maßgabe, daß, wenn R<sub>31</sub> die Imidogruppe bedeutet, R<sub>21</sub> ein Wasserstoffatom bedeutet.

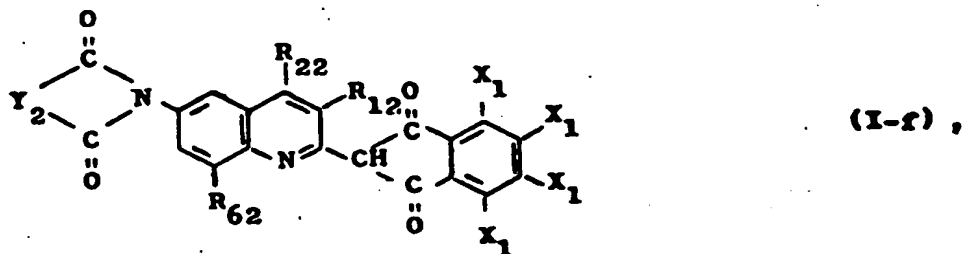
- 3 -

7. Verbindung nach Anspruch 1 mit der Formel



in der  $R_{62}$  ein Chlor- oder Bromatom, eine Alkylgruppe mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen oder eine Alkoxygruppe mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen,  $Y_2$  eine 1,2-Phenyl-, 1,2-Naphthyl-, 2,3-Naphthyl- oder 1,8-Naphthylengruppe bedeutet und  $X_1$  ein Chlor- oder Bromatom ist.

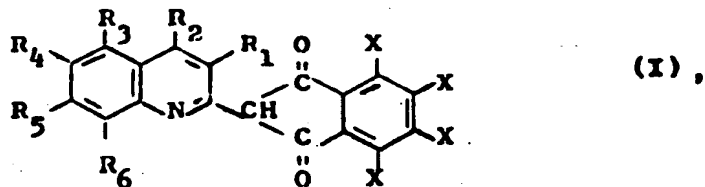
8. Verbindung nach Anspruch 1 mit der Formel



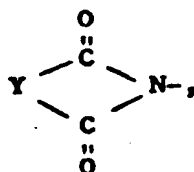
in der  $R_{12}$  und  $R_{22}$  unabhängig voneinander ein Wasserstoffatom oder eine Alkylgruppe mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen,  $R_{62}$  ein Chlor- oder Bromatom, eine Alkylgruppe mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen oder eine Alkoxygruppe mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen,  $Y_2$  eine 1,2-Phenyl-, 1,2-Naphthyl-, 2,3-Naphthyl- oder 1,8-Naphthylengruppe, gegebenenfalls durch 1 bis 4 Chlor- oder Bromatome substituiert, und  $X_1$  ein Chlor- oder Bromatom bedeuten.

2706872

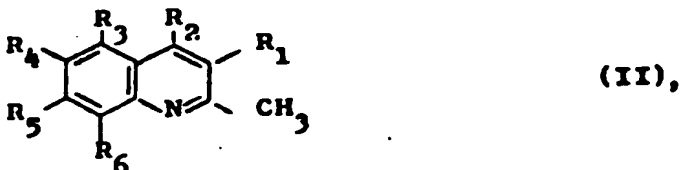
9. Verfahren zur Herstellung einer Verbindung der Formel



in der  $R_1$  ein Wasserstoffatom oder eine niedere Alkylgruppe,  $R_2$  und  $R_5$  unabhängig voneinander ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom oder eine niedere Alkylgruppe, eine der Gruppen  $R_3$  und  $R_4$  eine Imidogruppe der Formel



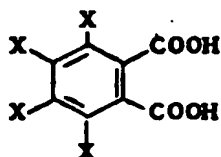
in der Y eine 1,2-Phenyl-, 1,2-Naphthyl-, 2,3-Naphthyl- oder 1,8-Naphthylengruppe, gegebenenfalls mit 1 bis 6 Substituenten, bedeutet, und die andere ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom oder eine niedere Alkylgruppe,  $R_6$  ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom, eine niedere Alkylgruppe oder eine niedere Alkoxygruppe und X ein Halogenatom bedeuten, mit der Maßgabe, daß, wenn  $R_3$  die Imidogruppe bedeutet,  $R_2$  ein Wasserstoff- oder Halogenatom bedeutet, dadurch gekennzeichnet, daß ein Chinaldinderivat der Formel



709834/0975

.5.

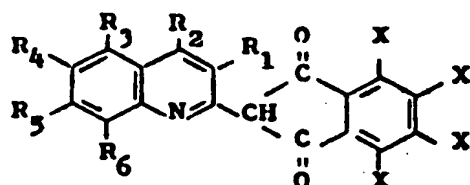
in der  $R_1$ ,  $R_2$ ,  $R_3$ ,  $R_4$ ,  $R_5$  und  $R_6$  wie oben definiert sind, mit einer Tetrahalogenphthalsäure der Formel



(III),

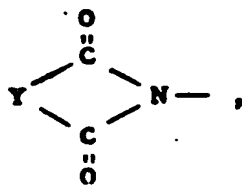
in der X wie oben definiert ist, oder einem reaktiven Derivat dieser Säure umgesetzt wird.

10. Gelbes organisches Pigment, enthaltend als färbenden Bestandteil eine Verbindung der Formel



(I),

in der  $R_1$  ein Wasserstoffatom oder eine niedere Alkylgruppe,  $R_2$  und  $R_5$  unabhängig voneinander ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom oder eine niedere Alkylgruppe, eine der Gruppen  $R_3$  und  $R_4$  eine Imidogruppe der Formel

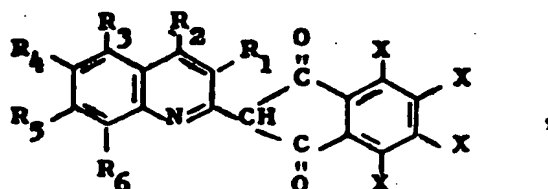


in der Y eine 1,2-Phenyl-, 1,2-Naphthyl-, 2,3-Naphthyl- oder 1,8-Naphthylengruppe, gegebenenfalls mit 1 bis 6 Substituenten, bedeutet, und die andere ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom oder eine niedere Alkylgruppe,  $R_6$  ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom, eine niedere Alkylgruppe oder eine niedere Alkoxygruppe und X ein Halogen-

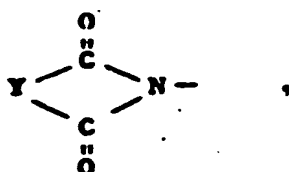
- 6 -

atom bedeuten, mit der Maßgabe, daß, wenn  $R_3$  die Imidogruppe bedeutet,  $R_2$  ein Wasserstoff- oder Halogenatom bedeutet.

11. Polymeres Material, gefärbt mit einer Verbindung der Formel



in der  $R_1$  ein Wasserstoffatom oder eine niedere Alkylgruppe,  $R_2$  und  $R_5$  unabhängig voneinander ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom oder eine niedere Alkylgruppe, eine der Gruppen  $R_3$  und  $R_4$  eine Imidogruppe der Formel



in der Y eine 1,2-Phenyl-, 1,2-Naphthyl-, 2,3-Naphthyl- oder 1,8-Naphthylengruppe, gegebenenfalls mit 1 bis 6 Substituenten, bedeutet, und die andere ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom oder eine niedere Alkylgruppe,  $R_6$  ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom, eine niedere Alkylgruppe oder eine niedere Alkoxygruppe und X ein Halogenatom bedeuten, mit der Maßgabe, daß, wenn  $R_3$  die Imidogruppe bedeutet,  $R_2$  ein Wasserstoff- oder Halogenatom bedeutet.

709834/0975

ORIGINAL INVENTED

2706872

PATENTANWELT  
HENKEL-KERN-FULLER-HANTEL  
Dr. phil. Dipl. Ing. Dr. rer. nat. Dipl. Ing.  
Möhlestraße 37 - 8000 München 80

.7.

17. Feb. 1977

TEIJIN LIMITED,  
11, 1-chome, Minamihonmachi, Higashi-ku,  
Osaka, Japan

---

Chinolinderivate, Verfahren zu ihrer Herstellung  
und ihre Verwendung

---

Die Erfindung betrifft Chinolinderivate, insbesondere neue Chinolinderivate, ein Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Färbemittel.

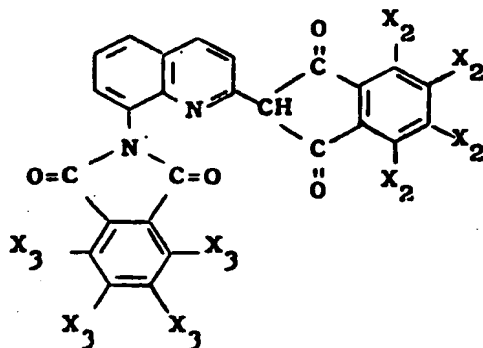
Eine Reihe von Chinolinderivaten, insbesondere Chino-phthalonverbindungen, sind bisher bekannt geworden. Z.B. offenbart die US-PS 3 622 583 Verbindungen der fol-

709834/0975

ORIGINAL INSPECTED



genden Formel



in der  $X_2$  und  $X_3$  unabhängig voneinander ein Chlor- oder Bromatom darstellen, als gelbe Farbstoffe. Diese bisher vorgeschlagenen Chinolinderivate besitzen keine ausreichende Wärme- und Wetterbeständigkeit und haben den Nachteil der Verfärbung, wenn sie z.B. beim Schmelzformen polymerer Materialien verwendet werden.

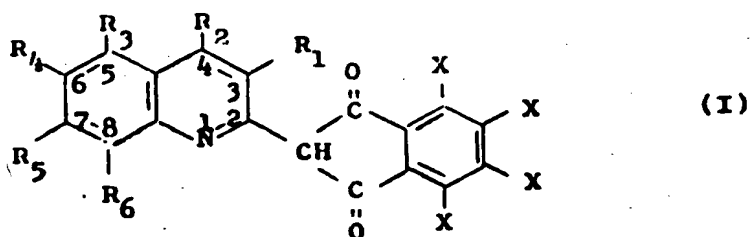
Erfindungsgemäß sollen neue Chinolinderivate mit überlegener Wärme-, Wetter-, Wanderungs- und Lösungsmittelbeständigkeit zur Verfügung gestellt werden. Weiter ist es Aufgabe der Erfindung, ein Verfahren zur Herstellung neuer Chinolinderivate mit überlegener Wärme-, Wetter-, Wanderungs- und Lösungsmittelbeständigkeit anzugeben. Die Erfindung soll schließlich gelbe Pigmente mit überlegener Wärme-, Wetter-, Wanderungs- und Lösungsmittelbeständigkeit sowie durch diese Pigmente gefärbte polymere Materialien liefern.

Weitere Aufgaben und Merkmale der Erfindung ergeben sich aus der folgenden Beschreibung.

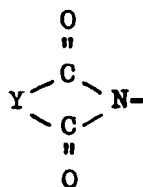
Erfindungsgemäß wird eine Verbindung der Formel

709834/0975

.9.



zur Verfügung gestellt, in der  $R_1$  ein Wasserstoffatom oder eine niedere Alkylgruppe,  $R_2$  und  $R_5$  unabhängig voneinander ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom oder eine niedere Alkylgruppe, eine der Gruppen  $R_3$  und  $R_4$  eine Imidogruppe der Formel



in der Y eine 1,2-Phenyl-, 1,2-Naphthyl-, 2,3-Naphthyl- oder 1,8-Naphthylengruppe, gegebenenfalls mit wenigstens einem Substituenten, und die andere ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom oder eine niedere Alkylgruppe,  $R_6$  ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom, eine niedere Alkylgruppe oder eine niedere Alkoxygruppe und X ein Halogenatom bedeuten, mit der Maßgabe, daß, wenn  $R_3$  die Imidogruppe bedeutet,  $R_2$  ein Wasserstoff- oder Halogenatom darstellt.

In der vorliegenden Beschreibung und den Ansprüchen bedeutet der Ausdruck "niedere Alkylgruppe" eine geradkettige oder verzweigt-kettige, gesättigte aliphatische Kohlenwasserstoffgruppe mit bis zu 5, bevorzugt 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und schließt z.B. Methyl, Äthyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, sec- oder tert.-Butyl, n- oder Neopentyl und i-Amyl

ein. Die Methyl- und Äthylgruppen sind besonders bevorzugt.

Der Ausdruck "niedere Alkoxygruppe" bezeichnet eine gesättigte aliphatische Kohlenwasserstoffoxygruppe mit bis zu 5, bevorzugt 1 bis 3 Kohlenstoffatomen, wobei der Alkylrest geradkettig oder verzweigt ist und z.B. Methoxy, Äthoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, sec.- oder tert.-Butoxy und n-Pentoxy einschließt. Die Methoxy- und Äthoxygruppen, insbesondere die ersteren, sind bevorzugt.

Der Ausdruck "Halogenatom" schließt Chlor-, Brom-, Fluor- und Jodatome ein. Insbesondere Chlor- und Bromatome sind bevorzugt.

Y in der Imidogruppe ist eine 1,2-Phenyl-, 1,2-Naphthyl-, 2,3-Naphthyl- oder 1,8-Naphthylengruppe, die einen oder mehrere Substituenten am Benzol- oder Naphthalinkern aufweisen kann. Gewöhnlich auf dem Gebiet der Pigmente und Farbstoffe zu findende Substituenten können verwendet werden, und Beispiele sind Halogenatome, niedere Alkylgruppen, niedere Alkoxygruppen und Arylsulfonylgruppen, wie z.B. Benzolsulfonyl, p-Toluolsulfonyl, p-Chlorbenzolsulfonyl oder p-Brombenzolsulfonyl. Die Halogenatome sind besonders bevorzugt. Die Zahl solcher Substituenten, die vorliegen kann, ist 1 bis 6, bevorzugt 1 bis 4. Wenn die Zahl 2 oder darüber ist, können die Substituenten identisch oder voneinander verschieden sein. Spezielle Beispiele für Y sind 1,2-Phenyl-, Monochlor(oder Monobrom)-1,2-phenyl-, Dichlor(oder Dibrom)-1,2-phenyl-, Tetrachlor(oder Tetrabrom)-1,2-phenyl-, 1,8-Naphthyl-, 3(oder 4)-Chlor-1,8-naphthyl-, 3(oder 4)-Brom-1,8-naphthyl-, Hexabrom-1,8-naphthyl-, 2,3-Naphthyl-, 5,8-Dibrom-2,3-naphthyl-, 5,6,7,8-Tetrabrom-2,3-naphthyl-, 1,2-Naphthyl- und Benzolsulfonyl-2,3-naphthyl-. Lediglich unter wirtschaft-

44.

lichem Gesichtspunkt sind 1,2-Phenylengruppen, gegebenenfalls mit 1 bis 4 Halogenatomen, insbesondere 1,2-Phenylen, Tetrachlor-1,2-phenylen und Tetrabrom-1,2-phenylen, bevorzugt.

Die Imidogruppe kann in 5- oder 6-Stellung des Chinolinkerns des Chinolinderivats der Formel (I) vorliegen. In diesem Falle kann ein Halogenatom oder eine niedere Alkylgruppe in der anderen der 5- oder 6-Positionen vorliegen, bevorzugt ist die andere Position aber unsubstituiert. Es wurde gefunden, daß Verbindungen der Formel (I), in der die Imidogruppe in 5-Stellung vorliegt (d.h.  $R_3$  stellt die Imidogruppe dar), im allgemeinen bessere Bewitterung aufweisen. Daher sind Verbindungen der Formel (I), in der  $R_3$  die Imidogruppe ist, eine Gruppe besonders bevorzugter erfindungsgemäßer Verbindungen.

Der Substituent  $R_6$  in 8-Stellung des Chinolinderivats der Formel (I) steht für ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom, eine niedere Alkylgruppe oder eine niedere Alkoxygruppe und es ist besonders vorteilhaft, wenn  $R_6$  eine andere Bedeutung als Wasserstoff hat.

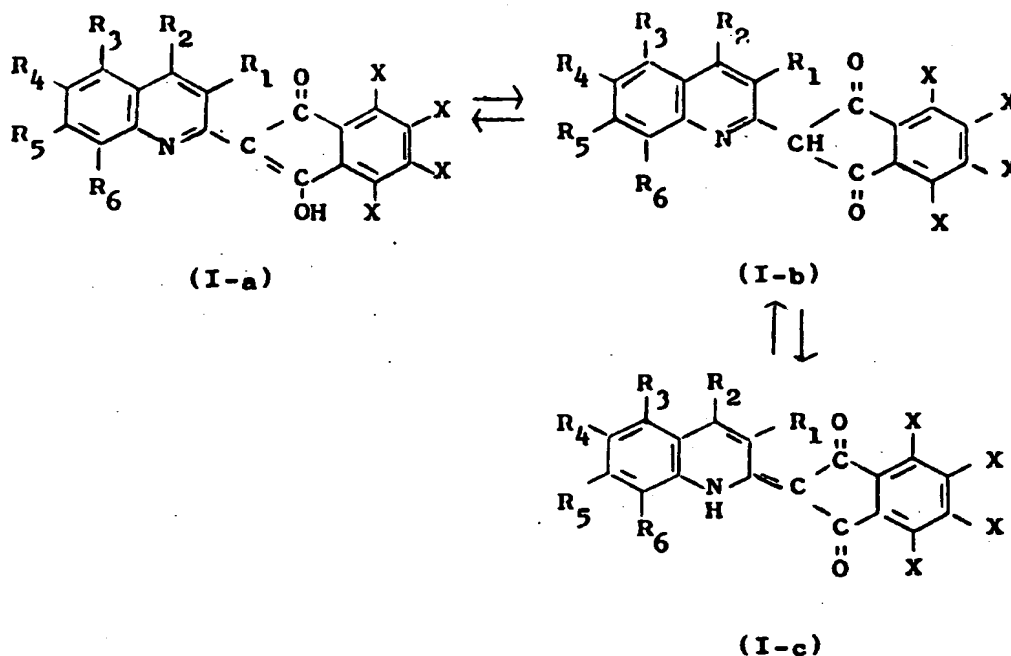
Erfindungsgemäß wurde gefunden, daß Verbindungen der Formel (I), in der  $R_6$  ein Halogenatom, insbesondere Chlor oder Brom, ist, gegenüber Verbindungen der Formel (I), in der  $R_6$  innerhalb der obigen Definition eine andere Bedeutung als Halogen hat, bessere Bewitterung aufweisen. Daher sind Verbindungen der Formel (I), in der  $R_6$  ein Halogenatom, insbesondere Chlor oder Brom, darstellt, eine weitere Gruppe erfindungsgemäßer bevorzugter Verbindungen.

Die erfindungsgemäß zur Verfügung gestellten Verbindungen der Formel (I) können tautomere Strukturen ausbilden, die

709834/0975

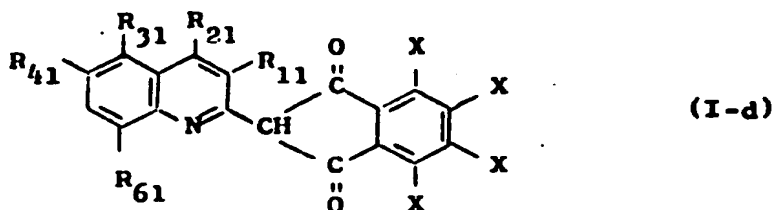
12.

nachfolgend schematisch dargestellt sind.



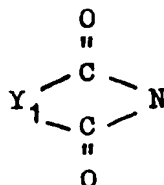
Es versteht sich, daß in der vorliegenden Beschreibung und in den Ansprüchen die Strukturformel (I) alle tautomeren Strukturen der Formeln (I-a), (I-b) und (I-c) darstellen soll.

Von den Verbindungen der Formel (I), wie sie erfindungsgemäß zur Verfügung gestellt werden, sind bevorzugte solche der Formel



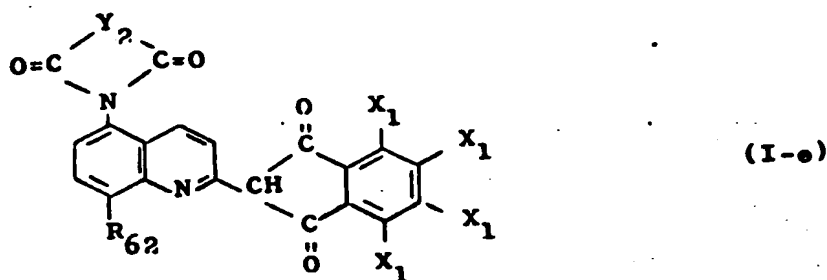
13.

in der  $R_{11}$  und  $R_{21}$  unabhängig voneinander ein Wasserstoffatom oder eine niedere Alkylgruppe, eine der Gruppen  $R_{31}$  und  $R_{41}$  eine Imidogruppe der Formel



in der  $Y_1$  eine 1,2-Phenyl-, 1,2-Naphthyl-, 2,3-Naphthyl- oder 1,8-Naphthylengruppe, gegebenenfalls mit 1 bis 6, bevorzugt 1 bis 4 Halogenatomen substituiert, und die andere ein Wasserstoffatom darstellt,  $R_{61}$  ein Halogenatom, eine niedere Alkylgruppe oder eine niedere Alkoxygruppe und  $X$  ein Halogenatom darstellen, mit der Maßgabe, daß, wenn  $R_{31}$  die Imidogruppe bedeutet,  $R_{21}$  ein Wasserstoffatom darstellt.

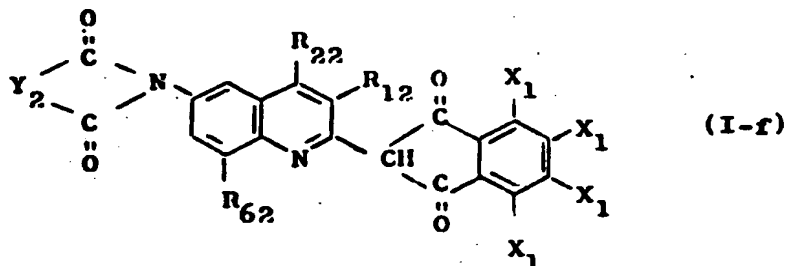
Die am meisten bevorzugten Verbindungen der Formel (I) in der am stärksten bevorzugten Gruppe werden durch die Formel



dargestellt, in der  $R_{62}$  ein Chlor- oder Bromatom, eine Alkylgruppe mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen oder eine Alkoxygruppe mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen,  $Y_2$  eine 1,2-Phenyl-, 1,2-Naphthyl-, 2,3-Naphthyl- oder 1,8-Naphthylengruppe, gegebenenfalls mit 1 bis 4 Chlor- oder Brom-

14.

atomen substituiert, und  $X_1$  ein Chlor- oder Bromatom bedeuten. Eine weitere bevorzugte Gruppe von Verbindungen der Formel (I) werden durch die Formel



ausgedrückt, in der  $R_{12}$  und  $R_{22}$  unabhängig voneinander ein Wasserstoffatom oder eine Alkylgruppe mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen,  $R_{62}$  ein Chlor- oder Bromatom, eine Alkylgruppe mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen oder eine Alkoxygruppe mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen,  $Y_2$  eine gegebenenfalls mit 1 bis 4 Chlor- oder Bromatomen substituierte 1,2-Phenyl-, 1,2-Naphthyl-, 2,3-Naphthyl- oder 1,8-Naphthylengruppe und  $X_1$  ein Chlor- oder Bromatom bedeuten.

Typische Beispiele der Verbindungen der Formel (I), (I-d), (I-e) oder (I-f) sind nachfolgend aufgeführt:

- (1) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-chlor-5(oder 6)-tetrachlor(oder tetrabrom)phthalimido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (2) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-brom-5(oder 6)-tetrachlor(oder tetrabrom)phthalimido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (3) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-methyl-5(oder 6)-tetrachlor(oder tetrabrom)phthalimido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,

145.

- (4) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-äthyl-5(oder 6)-tetrachlor(oder tetrabrom)phthalimido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (5) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-methoxy-5(oder 6)-tetrachlor(oder tetrabrom)phthalimido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (6) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-äthoxy-5(oder 6)-tetrachlor(oder tetrabrom)phthalimido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (7) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-chlor-5(oder 6)-phthalimido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (8) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-brom-5(oder 6)-phthalimido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (9) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-methyl-5(oder 6)-phthalimido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (10) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-äthyl-5(oder 6)-phthalimido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (11) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-methoxy-5(oder 6)-phthalimido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (12) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-äthoxy-5(oder 6)-phthalimido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (13) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-chlor-5(oder 6)-naphthalimido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (14) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-brom-5(oder 6)-naphthalimido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (15) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-methyl-5(oder 6)-naphthalimido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,



• 16.

- (16) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-{8-äthyl-5(oder 6)-naphthalimido-2-chinolinyl}-1,3-indandion,
- (17) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-{8-methoxy-5(oder 6)-naphthalimido-2-chinolinyl}-1,3-indandion,
- (18) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-{8-äthoxy-5(oder 6)-naphthalimido-2-chinolinyl}-1,3-indandion,
- (19) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-{8-chlor-5(oder 6)-[3(oder 4)-brom(oder chlor)-naphthalimido]-2-chinolinyl}-1,3-indandion,
- (20) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-{8-brom-5(oder 6)-[3(oder 4)-brom(oder chlor)-naphthalimido]-2-chinolinyl}-1,3-indandion,
- (21) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-{8-methyl-5(oder 6)-[3(oder 4)-brom(oder chlor)-naphthalimido]-2-chinolinyl}-1,3-indandion,
- (22) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-{8-äthyl-5(oder 6)-[3(oder 4)-brom(oder chlor)-naphthalimido]-2-chinolinyl}-1,3-indandion,
- (23) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-{8-methoxy-5(oder 6)-[3(oder 4)-brom(oder chlor)-naphthalimido]-2-chinolinyl}-1,3-indandion,
- (24) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-{8-äthoxy-5(oder 6)-[3(oder 4)-brom(oder chlor)-naphthalimido]-2-chinolinyl}-1,3-indandion,
- (25) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-{8-chlor-5(oder 6)-[5,8-dibromnaphthalin-2,3-dicarboximido]-2-chinolinyl}-1,3-indandion,

- 11 -

. 17.

- (26) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-{8-brom-5(oder 6)-[5,8-dibromnaphthalin-2,3-dicarboximido]-2-chinolinyl}-1,3-indandion,
- (27) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-{8-methyl-5(oder 6)-[5,8-dibromnaphthalin-2,3-dicarboximido]-2-chinolinyl}-1,3-indandion,
- (28) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-{8-äthyl-5(oder 6)-[5,8-dibromnaphthalin-2,3-dicarboximido]-2-chinolinyl}-1,3-indandion,
- (29) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-{8-methoxy-5(oder 6)-[5,8-dibromnaphthalin-2,3-dicarboximido]-2-chinolinyl}-1,3-indandion,
- (30) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-{8-äthoxy-5(oder 6)-[5,8-dibromnaphthalin-2,3-dicarboximido]-2-chinolinyl}-1,3-indandion,
- (31) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-{8-chlor-5(oder 6)-[5,6,7,8-tetrabromnaphthalin-2,3-dicarboximido]-2-chinolinyl}-1,3-indandion,
- (32) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-{8-brom-5(oder 6)-[5,6,7,8-tetrabromnaphthalin-2,3-dicarboximido]-2-chinolinyl}-1,3-indandion,
- (33) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-{8-methyl-5(oder 6)-[5,6,7,8-tetrabromnaphthalin-2,3-dicarboximido]-2-chinolinyl}-1,3-indandion,
- (34) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-{8-äthyl-5(oder 6)-[5,6,7,8-tetrabromnaphthalin-2,3-dicarboximido]-2-chinolinyl}-1,3-indandion,

- (35) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-{8-methoxy-5(oder 6)-[5,6,7,8-tetrabromnaphthalin-2,3-dicarboximido]-2-chinolinyl}-1,3-indandion,
- (36) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-{8-äthoxy-5(oder 6)-[5,6,7,8-tetrabromnaphthalin-2,3-dicarboximido]-2-chinolinyl}-1,3-indandion,
- (37) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-chlor-5(oder 6)-naphthalin-1,2-dicarboximido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (38) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-brom-5(oder 6)-naphthalin-1,2-dicarboximido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (39) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-methyl-5(oder 6)-naphthalin-1,2-dicarboximido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (40) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-äthyl-5(oder 6)-naphthalin-1,2-dicarboximido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (41) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-methoxy-5(oder 6)-naphthalin-1,2-dicarboximido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (42) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-äthoxy-5(oder 6)-naphthalin-1,2-dicarboximido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (43) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-chlor-5(oder 6)-benzolsulfonylnaphthalin-2,3-dicarboximido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,

- (44) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-brom-5(oder 6)-benzolsulfonylnaphthalin-2,3-dicarboximido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (45) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-methyl-5(oder 6)-benzolsulfonylnaphthalin-2,3-dicarboximido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (46) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-äthyl-5(oder 6)-benzolsulfonylnaphthalin-2,3-dicarboximido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (47) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-methoxy-5(oder 6)-benzolsulfonylnaphthalin-2,3-dicarboximido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (48) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-äthoxy-5(oder 6)-benzolsulfonylnaphthalin-2,3-dicarboximido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (49) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-chlor-5(oder 6)-diphenimido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (50) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-brom-5(oder 6)-diphenimido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (51) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-methyl-5(oder 6)-diphenimido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (52) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-äthyl-5(oder 6)-diphenimido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (53) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-methoxy-5(oder 6)-diphenimido-2-chinolinyl]-1,3-indandion, . . .
- (54) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-äthoxy-5(oder 6)-diphenimido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,

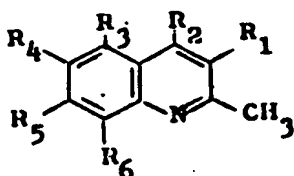
.20.

- (55) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-chlor-5(oder 6)-tetrachlor(oder tetrabrom)phthalimido-4-methyl(oder Äthyl)-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (56) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-brom-5(oder 6)-tetrachlor(oder tetrabrom)phthalimido-4-methyl(oder Äthyl)-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (57) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-methoxy-5(oder 6)-tetrachlor(oder tetrabrom)phthalimido-4-methyl(oder Äthyl)-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (58) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-Äthoxy-5(oder 6)-tetrachlor(oder tetrabrom)phthalimido-4-methyl(oder Äthyl)-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (59) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-chlor-5(oder 6)-tetrachlor(oder tetrabrom)phthalimido-3,4-dimethyl-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (60) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-brom-5(oder 6)-tetrachlor(oder tetrabrom)phthalimido-3,4-dimethyl-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (61) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-Äthyl-5(oder 6)-tetrachlor(oder tetrabrom)phthalimido-3,4-dimethyl-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (62) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-methoxy-5(oder 6)-tetrachlor(oder tetrabrom)phthalimido-3,4-dimethyl-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (63) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[8-Äthoxy-5(oder 6)-tetrachlor(oder tetrabrom)phthalimido-3,4-dimethyl-2-chinolinyl]-1,3-indandion,

. 21.

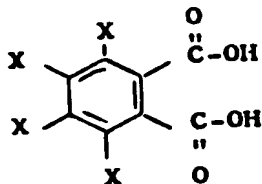
- (64) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[3,4,8-trimethyl-5(oder 6)-tetrachlor(oder tetrabrom)phthalimido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (65) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[5(oder 6)-tetrachlor(oder tetrabrom)phthalimido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (66) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[6-chlor-5-tetrachlor(oder tetrabrom)phthalimido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (67) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[6-methyl-5-tetrachlor(oder tetrabrom)phthalimido-2-chinolinyl]-1,3-indandion,
- (68) 4,5,6,7-Tetrachlor(oder Tetrabrom)-2-[5(oder 6)-tetrachlor(oder tetrabrom)phthalimido-4,8-dimethyl-2-chinolinyl]-1,3-indandion.

Die Verbindung der Formel (I) kann leicht hergestellt werden, z.B. durch Umsetzen eines Chinaldinderivats der Formel



(II),

in der  $R_1$ ,  $R_2$ ,  $R_3$ ,  $R_4$ ,  $R_5$  und  $R_6$  wie oben definiert sind, mit einer Tetrahalogenphthalsäure der Formel



(III),

in der X wie oben definiert ist, oder eines reaktiven Derivats der Säure.

Die Umsetzung zwischen dem Chinaldinderivat der Formel (II) und der Tetrahalogenphthalsäure der Formel (III) oder ihres reaktiven Derivats kann ohne Lösungsmittel durchgeführt werden. Im allgemeinen jedoch wird sie in einem Lösungsmittel durchgeführt. Brauchbare Lösungsmittel sind organische Lösungsmittel, die unter den Reaktionsbedingungen inert sind, z.B. Kohlenwasserstoffe, wie etwa Decalin, Tetralin oder Trimethylbenzol; halogenierte Kohlenwasserstoffe, z.B. Dichlorbenzol, Trichlorbenzol oder Chlornaphthalin, nitrierte Kohlenwasserstoffe, wie z.B. Nitrobenzol, Äther, wie z.B. Diphenyläther, und N-Methylpyrrolidon.

Die Umsetzung wird im allgemeinen in der Wärme durchgeführt. Die Temperatur kann über einen weiten Bereich variieren, entsprechend z.B. der Art und den Verhältnissen der Ausgangsmaterialien oder der Art des Lösungsmittels. Gewöhnlich beträgt sie 100 bis 300°C, vorzugsweise 150 bis 270°C. Der Reaktionsdruck ist gewöhnlich normaler Atmosphärendruck, wenn jedoch erwünscht, kann die Reaktion bei vermindertem oder erhöhtem Druck durchgeführt werden. In dem obigen Temperaturbereich ist die Umsetzung im allgemeinen in 2 bis 10 h beendet.

Die Anteilmenngen oder Verhältnisse des Chinaldinderivats der Formel (II) und der Tetrahalogenphthalsäure der Formel (III) oder ihres reaktiven Derivats sind unkritisch und können über einen weiten Bereich entsprechend z.B. den Ausgangsmaterialien oder den Reaktionsbedingungen variiert werden. Im allgemeinen ist es von Vorteil, daß die Tetrahydrophthalsäure oder ihr reaktives Derivat in einer Menge verwendet wird, die dem Chinaldinderivat wenigstens äquimolar ist, vorzugsweise in ge-

ringem Überschuß (die 1,2 bis 3-fache Molmenge, insbesondere die etwa 2,0-fache Molmenge).

Die Umsetzung verläuft unter Erhitzen der beiden Ausgangsmaterialien unter den obigen Reaktionsbedingungen zufriedenstellend. Vorteilhafterweise jedoch kann die Reaktion in Gegenwart einer katalytischen Menge eines Friedel-Crafts-Katalysators, wie z.B. Zinkchlorid, Aluminiumchlorid, Antimonpentoxid, Eisenrichlorid, Zinntetrachlorid oder Titan-tetrachlorid, durchgeführt werden. Die Anwesenheit des Katalysators ist besonders erforderlich, wenn die Reaktionstemperatur verhältnismäßig niedrig ist, z.B. nicht höher als etwa 250°C, weil bei solchen Temperaturen die Reaktionsgeschwindigkeit abnimmt.

Bei der obigen Reaktion als Nebenprodukt entstandenes Wasser sollte während der Reaktion möglichst aus dem Reaktionssystem durch eine geeignete Maßnahme, wie z.B. durch Verdampfen, Verwendung eines entwässernden Mittels oder azeotrope Destillation, entfernt werden.

Typische Beispiele für die Chinaldinderivate der Formel (II), die als Ausgangsmaterial in der obigen Reaktion eingesetzt werden, sind folgende:

- 5(oder 6)-Phthalimido-8-chlor-chinaldin,
- 5(oder 6)-Phthalimido-8-brom-chinaldin,
- 5(oder 6)-Phthalimido-8-methyl-chinaldin,
- 5(oder 6)-Phthalimido-8-äthyl-chinaldin,
- 5(oder 6)-Phthalimido-8-methoxy-chinaldin,
- 5(oder 6)-Phthalimido-8-äthoxy-chinaldin,
- 5(oder 6)-Tetrachlor(oder Tetrabrom)phthalimido-8-chlor-chinaldin,
- 5(oder 6)-Tetrachlor(oder Tetrabrom)phthalimido-8-brom-chinaldin,



-24-

5(oder 6)-Tetrachlor(oder Tetrabrom)phthalimido-  
8-methyl-chinaldin,  
5(oder 6)-Tetrachlor(oder Tetrabrom)phthalimido-  
8-äthyl-chinaldin,  
5(oder 6)-Tetrachlor(oder Tetrabrom)phthalimido-  
8-methoxy-chinaldin,  
5(oder 6)-Tetrachlor(oder Tetrabrom)phthalimido-  
8-äthoxy-chinaldin,  
5(oder 6)-Naphthalimido-8-chlor-chinaldin,  
5(oder 6)-Naphthalimido-8-brom-chinaldin,  
5(oder 6)-Naphthalimido-8-methyl-chinaldin,  
5(oder 6)-Naphthalimido-8-äthyl-chinaldin,  
5(oder 6)-Naphthalimido-8-methoxy-chinaldin,  
5(oder 6)-Naphthalimido-8-äthoxy-chinaldin,  
5(oder 6)-[3(oder 4)-Chlor(oder Brom)-naphthal-  
imido]-8-chlor-chinaldin,  
5(oder 6)-[3(oder 4)-Chlor(oder Brom)-naphthal-  
imido]-8-brom-chinaldin,  
5(oder 6)-[3(oder 4)-Chlor(oder Brom)-naphthalimi-  
do]-8-methyl-chinaldin,  
5(oder 6)-[3(oder 4)-Chlor(oder Brom)-naphthalimi-  
do]-8-äthyl-chinaldin,  
5(oder 6)-[3(oder 4)-Chlor(oder Brom)-naphthalimi-  
do]-8-methoxy-chinaldin,  
5(oder 6)-[3(oder 4)-Chlor(oder Brom)-naphthalimi-  
do]-8-äthoxy-chinaldin,  
5(oder 6)-Naphthalin-2,3-dicarboximido-8-chlor-  
chinaldin,  
5(oder 6)-Naphthalin-2,3-dicarboximido-8-brom-  
chinaldin,  
5(oder 6)-Naphthalin-2,3-dicarboximido-8-methyl-  
chinaldin,  
5(oder 6)-Naphthalin-2,3-dicarboximido-8-äthyl-  
chinaldin,

709834/0975

5(oder 6)-Naphthalin-2,3-dicarboximido-8-methoxy-chinaldin,  
5(oder 6)-Naphthalin-2,3-dicarboximido-8-äthoxy-chinaldin,  
5(oder 6)-(5,8-Dibrom-naphthalin-2,3-dicarboximido)-8-chlor-chinaldin,  
5(oder 6)-(5,8-Dibrom-naphthalin-2,3-dicarboximido)-8-brom-chinaldin,  
5(oder 6)-(5,8-Dibrom-naphthalin-2,3-dicarboximido)-8-methyl-chinaldin,  
5(oder 6)-(5,8-Dibrom-naphthalin-2,3-dicarboximido)-8-äthyl-chinaldin,  
5(oder 6)-(5,8-Dibrom-naphthalin-2,3-dicarboximido)-8-methoxy-chinaldin,  
5(oder 6)-(5,8-Dibrom-naphthalin-2,3-dicarboximido)-8-äthoxy-chinaldin,  
5(oder 6)-(5,6,7,8-Tetrabrom-naphthalin-2,3-dicarboximido)-8-chlor-chinaldin,  
5(oder 6)-(5,6,7,8-Tetrabrom-naphthalin-2,3-dicarboximido)-8-brom-chinaldin,  
5(oder 6)-(5,6,7,8-Tetrabrom-naphthalin-2,3-dicarboximido)-8-methyl-chinaldin,  
5(oder 6)-(5,6,7,8-Tetrabrom-naphthalin-2,3-dicarboximido)-8-äthyl-chinaldin,  
5(oder 6)-(5,6,7,8-Tetrabrom-naphthalin-2,3-dicarboximido)-8-methoxy-chinaldin,  
5(oder 6)-(5,6,7,8-Tetrabrom-naphthalin-2,3-dicarboximido)-8-äthoxy-chinaldin,  
5(oder 6)-(Naphthalin-1,2-dicarboximido)-8-chlor-chinaldin,  
5(oder 6)-(Naphthalin-1,2-dicarboximido)-8-brom-chinaldin,  
5(oder 6)-(Naphthalin-1,2-dicarboximido)-8-methyl-chinaldin,

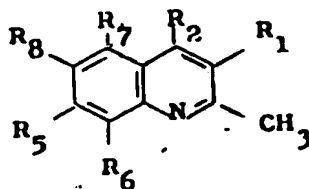
## . 26.

5(oder 6)-(Naphthalin-1,2-dicarboximido)-8-  
äthyl-chinaldin,  
5(oder 6)-(Naphthalin-1,2-dicarboximido)-8-  
methoxy-chinaldin,  
5(oder 6)-(Naphthalin-1,2-dicarboximido)-8-  
äthoxy-chinaldin,  
5(oder 6)-Diphenimido-8-chlor-chinaldin,  
5(oder 6)-Diphenimido-8-brom-chinaldin,  
5(oder 6)-Diphenimido-8-methyl-chinaldin,  
5(oder 6)-Diphenimido-8-äthyl-chinaldin,  
5(oder 6)-Diphenimido-8-methoxy-chinaldin,  
5(oder 6)-Diphenimido-8-äthoxy-chinaldin,  
5(oder 6)-Tetrachlor(oder Tetrabrom)phthalimido-  
8-chlor-4-methyl(oder äthyl)-chinaldin,  
5(oder 6)-Tetrachlor(oder Tetrabrom)phthalimido-  
8-brom-4-methyl(oder äthyl)-chinaldin,  
5(oder 6)-Tetrachlor(oder Tetrabrom)phthalimido-  
8-methyl-4-methyl(oder äthyl)-chinaldin,  
5(oder 6)-Tetrachlor(oder Tetrabrom)phthalimido-  
8-äthyl-4-methyl(oder äthyl)-chinaldin,  
5(oder 6)-Tetrachlor(oder Tetrabrom)phthalimido-  
8-äthyl-4-methyl(oder äthyl)-chinaldin,  
5(oder 6)-Tetrachlor(oder Tetrabrom)phthalimido-  
8-methoxy-4-methyl(oder äthyl)-chinaldin,  
5(oder 6)-Tetrachlor(oder Tetrabrom)phthalimido-  
8-äthoxy-4-methyl(oder äthyl)-chinaldin,  
5(oder 6)-Tetrabrom(oder Tetrachlor)phthalimido-  
8-chlor-3,4-dimethyl-chinaldin,  
5(oder 6)-Tetrabrom(oder Tetrachlor)phthalimido-  
8-brom-3,4-dimethyl-chinaldin,  
5(oder 6)-Tetrabrom(oder Tetrachlor)phthalimido-  
8-methyl-3,4-dimethyl-chinaldin,  
5(oder 6)-Tetrabrom(oder Tetrachlor)phthalimido-  
8-äthyl-3,4-dimethyl-chinaldin,

5(oder 6)-Tetrabrom(oder Tetrachlor)phthalimido-  
8-methoxy-3,4-dimethyl-chinaldin,  
5(oder 6)-Tetrabrom(oder Tetrachlor)phthalimido-  
8-äthoxy-3,4-dimethyl-chinaldin, und  
5(oder 6)-Tetrabrom(oder Tetrachlor)phthalimido-  
chinaldin-6-chlor(oder methyl)-5-tetrachlor  
(oder tetrabrom)phthalimido-chinaldin.

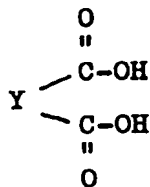
Die Tetrahalogenphthalsäuren (III) sind bekannt, und Tetra-  
chlorphthalsäure und Tetrabromphthalsäure z.B. können in  
geeigneter Weise eingesetzt werden. Die reaktiven Derivate  
der Tetrahalogenphthalsäuren sind z.B. ihre Anhydride und  
Ester, insbesondere niedere Alkylester.

Das als Ausgangsmaterial eingesetzte Chinaldinderivat der  
Formel (II) ist eine neue Verbindung und kann beispiels-  
weise hergestellt werden durch Umsetzen eines 5- oder 6-  
Aminochinaldinderivats der Formel



(IV),

in der eine der Gruppen  $R_7$  und  $R_8$  eine Aminogruppe und die  
andere ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom oder eine nie-  
dere Alkylgruppe bedeuten und  $R_1$ ,  $R_2$ ,  $R_5$  und  $R_6$  wie oben  
definiert sind, mit der Maßgabe, daß, wenn  $R_7$  eine Amino-  
gruppe bedeutet,  $R_2$  ein Wasserstoffatom oder ein Halogen-  
atom darstellt, mit einer Aryldicarbonsäure der folgenden  
Formel



(V),

in der Y wie oben definiert ist, oder eines reaktiven Derivats dieser Säure.

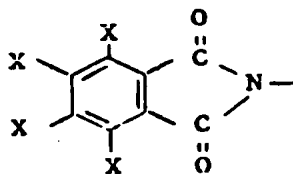
Die Umsetzung zwischen der Verbindung der Formel (IV) und der Verbindung der Formel (V) kann durch Erhitzen ohne ein Lösungsmittel oder vorzugsweise in einem Lösungsmittel der zuvor beschriebenen Art durchgeführt werden. Im allgemeinen wird diese Reaktion unter milderer Reaktionsbedingungen durchgeführt als bei der Umsetzung des Chinolinderivats der Formel (II) mit der Tetrahalogenphthalsäure der Formel (III) oder deren reaktivem Derivat. Beispielsweise ist die Temperatur im allgemeinen 100 bis 250°C. Wenn aber die Reaktionstemperatur steigt, kondensiert nicht nur die Aminogruppe in 5- oder 6-Stellung der Verbindung der Formel (IV) mit der Verbindung der Formel (V), sondern es besteht auch eine zunehmende Tendenz der Methylgruppe in 2-Stellung, durch die Verbindung der Formel (V) oder ihr reaktives Derivat angegriffen zu werden. Wird eine so hohe Reaktionstemperatur angewandt, werden geeignete Maßnahmen, z.B. eine Verkürzung der Reaktionszeit, ergriffen, um überwiegend die Verbindung der Formel (II) zu bilden. Diese Reaktion erfordert keine Katalysatoren.

Das Verhältnis zwischen der Verbindung der Formel (IV) und der Verwendung der Formel (V) oder ihrem reaktiven Derivat ist unkritisch, das Molverhältnis der ersteren zur letzteren wird aber vorteilhaft auf etwa 1:1 bis etwa 1:1,2 eingestellt.

Die so hergestellte Verbindung der Formel (II) kann bei der Reaktion zur Herstellung des Chinolinderivats gemäß der Erfindung eingesetzt werden, entweder direkt ohne Isolierung oder nach Isolierung. Wird sie nicht isoliert, ist es wünschenswert, die Verbindung der Formel (IV) und die Verbin-

ung der Formel (V) oder deren reaktives Derivat in im wesentlichen äquimolaren Verhältnissen umzusetzen.

Gemäß einem weiteren Aspekt der Erfindung kann eine Verbindung der Formel (I), in der Y die Gruppe der Formel



darstellt,

direkt aus dem 5- oder 6-Aminochinaldinderivat der Formel (IV) durch Umsetzen mit der Tetrahalogenphthalsäure der Formel (III) oder deren reaktivem Derivat hergestellt werden. Diese Umsetzung kann unter den gleichen Bedingungen, wie oben unter Bezug auf die Reaktion des Chinaldinderivats der Formel (II) mit der Tetrahalogenphthalsäure der Formel (III) oder deren reaktivem Derivat beschrieben, durchgeführt werden. Das Verhältnis zwischen dem 5- oder 6-Aminochinaldinderivat der Formel (IV) und der Tetrahalogenphthalsäure der Formel (III) oder deren reaktivem Derivat ist unkritisch, und vorteilhaft werden wenigstens 2 Mol (vorzugsweise bis zu etwa 6 Mol) der Tetrahydrophthalsäure der Formel (III) pro Mol der Verbindung der Formel (IV) eingesetzt.

Typische Beispiele der 5- oder 6-Aminochinaldinderivate der Formel (IV), die als Ausgangsmaterial in der obigen Reaktion eingesetzt werden, sind folgende:

- 5(oder 6)-Amino-8-chlor-chinaldin,
- 5(oder 6)-Amino-8-brom-chinaldin,
- 5(oder 6)-Amino-8-methyl-chinaldin,
- 5(oder 6)-Amino-8-äthyl-chinaldin,
- 5(oder 6)-Amino-8-methoxy-chinaldin,

- 24 -

- 30 -

5(oder 6)-Amino-8-äthoxy-chinaldin,  
5(oder 6)-Amino-8-chlor-4-methyl(oder äthyl)-  
chinaldin,  
5(oder 6)-Amino-8-brom-4-methyl(oder äthyl)-  
chinaldin,  
5(oder 6)-Amino-8-methoxy-4-methyl(oder äthyl)-  
chinaldin,  
5(oder 6)-Amino-8-äthoxy-4-methyl(oder äthyl)-  
chinaldin,  
5(oder 6)-Amino-4,8-dimethyl(oder diäthyl)-chi-  
naldin,  
5(oder 6)-Amino-4-äthyl-8-methyl(oder äthyl)-  
chinaldin,  
5(oder 6)-Amino-3,4,8-trimethyl-chinaldin,  
5(oder 6)-Amino-chinaldin,  
5(oder 6)-Amino-3,4-dimethyl-chinaldin,  
5(oder 6)-Amino-4-methyl(oder äthyl)chinaldin.

Beispiele für die Aryldicarbonsäure der Formel (V), die mit dem 5- oder 6-Aminochinaldinderivat der Formel (IV) umgesetzt werden soll, sind folgende:

Phthalsäure,  
Monochlor(oder Monobrom)phthalsäure,  
Dichlor(oder Dibrom)phthalsäure,  
Tetrachlor(oder Tetrabrom)phthalsäure,  
Naphthalsäure,  
3(oder 4)-Chlornaphthalsäure,  
3(oder 4)-Bromnaphthalsäure,  
Naphthalin-2,3-dicarbonsäure,  
5,8-Dibrom-naphthalin-2,3-dicarbonsäure,  
5,6,7,8-Tetrabrom-naphthalin-2,3-dicarbonsäure,  
Naphthalin-1,2-dicarbonsäure,  
Benzolsulfonyl-naphthalin-2,3-dicarbonsäure,

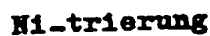
31.

Hexachlor(oder Hexabrom)-naphthalsäure,  
Dichlor(oder Dibrom)naphthalin-1,2-dicarbon-  
säure, und  
6',7'-Phthaloyl-phthalsäure.

Die reaktiven Derivate dieser Aryldicarbonensäuren schließen vorteilhafterweise Anhydride oder Ester, insbesondere niedere Alkylester ein.

Einige der 5- oder 6-Aminochinaldinderivate der Formel (IV) sind auch neue Verbindungen und können z.B. über die folgenden Stufen hergestellt werden:





**709834/0975**

## .33.

Die Umsetzung der Verbindung der Formel (VI-a) oder (VI-b) mit der Verbindung der Formel (VII oder (X) kann nach dem Doebner-Miller-Syntheseverfahren oder seiner modifizierten Version durchgeführt werden [vgl. z.B. Robert C. Elderfield, Heterocyclic Compounds, Band IV, Kap. I, Seiten 1 bis 344 (1952), John Wiley & Sons, Inc.]. Die Nitrierung der Verbindung der Formel (VIII) und die Reduktion der Verbindung der Formel (IX) oder (XI) kann nach herkömmlichen Methoden erfolgen.

Das Produkt der Formel (I) kann aus dem Reaktionsgemisch nach irgendeinem bekannten Verfahren abgetrennt und gereinigt werden. Z.B. wird das Reaktionsgemisch nach der Reaktion gekühlt, und der erhaltene Niederschlag wird abgetrennt und z.B. durch Filtrieren oder durch Zentrifugieren gewonnen. Die so gewonnene Verbindung der Formel (I) ist genügend rein und kann auf nachfolgend zu beschreibenden Anwendungsgebieten eingesetzt werden. Sie kann gewünschtenfalls weiter gereinigt werden, indem sie einmal oder mehrmals mit einem organischen Lösungsmittel, z.B. Alkoholen, wie etwa Methanol oder Äthanol, Ketonen, wie z.B. Aceton oder Methyläthylketon, Amiden, wie etwa Dimethylformamid oder Dimethylacetamid, N-Methylpyrrolidon oder  $\alpha$ -Chlornaphthalin, gewaschen wird. Zu einer alternativen Arbeitsweise gehört zuerst der Zusatz des organischen Lösungsmittels zum Reaktionsgemisch, Kühlen des Gemischs und Abtrennen und Gewinnen der ausgefällten Verbindung der Formel (I). Wenn gewünscht, kann das gewonnene Produkt der Formel (I) weiter mit einem organischen Lösungsmittel gewaschen werden.

Die Verbindung der Formel (I) kann einer pigmentbildenden Behandlung nach einer auf dem Gebiet der Pigmentchemie bekannten Methode unterworfen werden. Beispielsweise wird die Verbindung in konzentrierter Schwefelsäure gelöst, und die Lösung wird in Wasser gegossen, um die Verbindung in Form eines feinen Pulvers

- 34.

wieder auszufällen. Oder die Verbindung wird in einer Pulvermühle, wie z.B. einer Kugelmühle, fein pulverisiert.

Die erfindungsgemäß zur Verfügung gestellten Verbindungen der Formel (I) sind von gelber Farbe, überlegener Wärmestabilität, Bewitterungsfähigkeit, Lösungsmittel- und Witterungsbeständigkeit. Während die Verbindung der oben angegebenen Formel, die in der oben erwähnten UD-PS 3 622 583 offenbart ist, eine Neigung zu Verfärbung bei Berührung mit häufig verwendeten Zusätzen für Harze, wie z.B. Zinkstearat, haben, sind die Verbindungen der Formel (I) von diesem Nachteil völlig frei. Aufgrund dieser überlegenen Eigenschaften können die Verbindungen vorteilhaft als färbende Komponenten gelber organischer Pigmente eingesetzt werden.

Die Verbindungen der Formel (I) sind als gelbe organische Pigmente brauchbar und können ebenso wie gewöhnliche organische Pigmente auf einer großen Reihe von Anwendungsgebieten eingesetzt werden, z.B. zum Färben von polymeren Formerzeugnissen oder als färbende Bestandteile von Anstrichfarben, Druckfarben, Zeichenstiften, Anstrichpasten und Textildruckpasten.

Insbesondere können die Verbindungen der Formel (I) in vorteilhafter Weise zum Färben einer Vielzahl polymerer Materialien eingesetzt werden, z.B. bei Polyolefinen, Polystyrol, Acrylharzen, Vinylharzen, Polyamiden, Polyestern, Acetalharzen, Polycarbonaten, ABS-Harzen, Aminoharzen, Regeneratcellulose, Epoxyharzen, Phenolharzen, Harnstoffharzen, Melaminharzen und Polyimiden.

In der vorliegenden Beschreibung und den Ansprüchen soll der Ausdruck "polymeres Material" nicht nur aus den vorstehenden Harzen hergestellte Formerzeugnisse, sondern auch diese Harze

als Binder, Träger usw. enthaltende Mittel umfassen, z.B. Anstrich- und Druckfarben sowie Textildruckpasten.

Ein zum Färben eines Formerzeugnisses aus einem die Verbindung der Formel (I) verwendenden Harz zur Verfügung stehendes Verfahren besteht darin, die Verbindung der Formel (I) in gewünschter Menge (z.B. 0,05 bis 1 Gewichtsteil, bevorzugt 0,1 bis 0,5 Gewichtsteil pro 100 Gewichtsteile Harz) in das Harz einzuarbeiten, das anfallende Gemisch zu schmelzen oder schmelzzukneten und es in eine gewünschte Form, z.B. einen Film, eine Folie, eine Platte, ein Rohr, einen Tubus, einen Faden oder ein Pellet nach einem herkömmlichen Harzverarbeitungsverfahren, wie z.B. Formpressen, Spritzgießen, Kalandern oder Strangpressen, zu verarbeiten. Nach einer anderen Methode wird die Verbindung der Formel (I) zuvor den Monomeren oder Vorpolymeren für die Bildung des Harzes zugesetzt, und das Gemisch wird polymerisiert und zur Ausbildung eines gefärbten Formerzeugnisses des Harzes in der vorgenannten Form verarbeitet (Gußformverfahren).

Die Verbindungen der Formel (I) können auch zum Färben von Fasern, gewebten oder gewirkten Textilien und nichtgewebten Textilien verwendet werden. Sie können beim Eintauchverfahren wie im Falle von Suspensionsfarbstoffen, oder nach einer Textildrucktechnik angewandt werden.

Das Einfärben kann auch durch Zusetzen der Verbindung der Formel (I) als Färbemittel zu Anstrichfarben, Lacken, Einbrenn-, Pulverfarben und wässrigen Emulsionsfarben usw. erfolgen. Sie kann auch als Färbemittel für Druckfarben durch gemeinsamen Zusatz mit für Druckfarben verwendeten polymeren Materialien verwendet werden. Die folgenden Beispiele und Vergleichsbeispiele veranschaulichen die Erfindung im einzelnen.

- 36 -

. 36.

Beispiel 1

- (A) Ein Gemisch aus 128 g (1,0 Mol) o-Chloranilin, 304 g konzentrierter Salzsäure und 61 g Wasser wurde bei 90 bis 95°C gehalten, und unter ausreichendem Rühren wurden 70 g (1,0 Mol) Crotonaldehyd im Verlauf von 2 h zugetropft. Nach der Zugabe wurde das Gemisch eine weitere Stunde bei 90 bis 95°C umgesetzt. Das Reaktionsgemisch wurde abgekühlt und dann durch Zugabe einer konzentrierten wässrigen Lösung mit 132 g Natriumhydroxid unter Eiskühlung alkalisch gemacht. Das alkalische Gemisch wurde in zwei Schichten getrennt, und die ölige Schicht wurde bei 2 bis 3 mm Hg destilliert und ergab 72 g (0,4 Mol) 8-Chlorchinaldin.
- (B) 53,3 g (0,3 Mol) des erhaltenen 8-Chlorchinaldins wurden in 180,2 g 98 %iger Schwefelsäure gelöst, und bei 40°C wurden 40,2 g Salpetersäure (spezifisches Gewicht 1,50) im Verlauf einer Stunde zugetropft, worauf weitere 30 min umgesetzt wurde. Das Reaktionsgemisch wurde in Eiswasser gegossen und mit wässriger Natriumhydroxidlösung neutralisiert. Das ausgefallene Produkt wurde durch Filtrieren gesammelt, mit Wasser gewaschen und getrocknet, um 64,1 g (0,29 Mol) 8-Chlor-5-nitrochinaldin zu ergeben.
- (C) 85 g Eisenpulver wurden in einem Gemisch aus 130 g Äthanol, 30 g Wasser und 3 g 35 %iger Salzsäure dispergiert. Die Dispersion wurde auf 80 bis 90°C erwärmt, und 44,0 g (0,25 Mol) 5-Nitro-8-chlorchinaldin, erhalten nach der zuvor im Abschnitt (B) ausgeführten Arbeitsweise, wurden zugesetzt. Das Gemisch wurde 1 h gerührt. Nach der Umsetzung wurde das Reaktionsgemisch mit einer wässrigen Natriumcarbonatlösung neutralisiert, und das Eisenpulver wurde abfiltriert. Dieses wurde mit 200 g heißem Äthanol gewaschen. Die Waschflüssigkeit und das Filtrat wurden

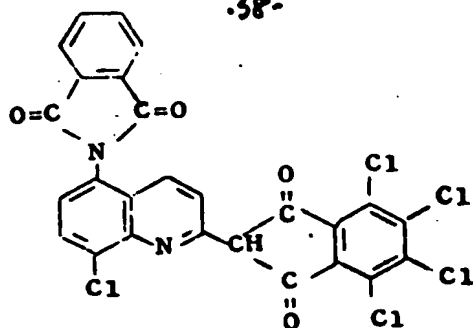
vereinigt und das Äthanol abgedampft. Die abgeschiedenen Kristalle wurden durch Filtrieren abgetrennt, mit Wasser gewaschen und getrocknet, um 43,3 g (0,22 Mol) 8-Chlor-5-Aminochinaldin zu ergeben.

- (D) 95 g Trichlorbenzol wurden zu 23,3 g (0,12 Mol) 8-Chlor-5-aminochinaldin und 18,0 g (0,12 Mol) Phthalsäureanhydrid gegeben, und das Gemisch wurde 2 h unter Rückfluß beim Siedepunkt umgesetzt. Nach dem Abkühlen wurden die ausgefallenen Kristalle durch Filtrieren abgetrennt und getrocknet, um 32 g (0,10 Mol) 8-Chlor-5-phthalimidochinaldin zu ergeben.
- (E) 43 g (0,15 Mol) 3,4,5,6-Tetrachlorphthalsäureanhydrid, 200 g Trichlorbenzol und 4 g wasserfreies Zinkchlorid wurden zu dem Produkt des Abschnitts (D) gegeben, und das Gemisch wurde 3 h unter Rückfluß umgesetzt. Dann wurden 50 g Dimethylformamid zugesetzt, und das Gemisch wurde 1 h unter Rückfluß gerührt.
- (F) Das Reaktionsgemisch wurde dann gekühlt und filtriert. Das erhaltene gelbe Produkt wurde mit 100 g Dimethylformamid und dann mit Äthanol gewaschen und getrocknet, um 54,5 g (0,09 Mol) einer gelben Verbindung der folgenden Strukturformel (1) zu ergeben. Die maximale Absorptionswellenlänge seines sichtbaren Spektrums war 427 nm (bestimmt in Dimethylformamidlösung). Das Produkt hatte einen Schmelzpunkt von über 360°C, und ein IR-Spektrum (KBr) des Produkts zeigte charakteristische Absorptionen bei 1793  $\text{cm}^{-1}$  und 1730  $\text{cm}^{-1}$ , die dem Carbonyl in der Imidbindung zuzuschreiben sind, und charakteristische Absorptionen bei 1693  $\text{cm}^{-1}$  und 1640  $\text{cm}^{-1}$ , die dem Carbonyl des Indandion zuzuschreiben sind. Aus diesen und den Daten des Massenspektrums dieses Produkts wurde es zu 4,5,6,7-Tetrachlor-2-(8-chlor-5-phthalimido-2-chinoliny)-1,3-indandion der folgenden Formel bestimmt:

2706872

- 32 -

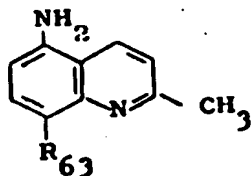
.38-



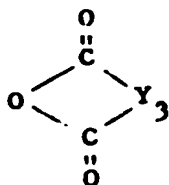
----- (1)

Beispiele 2 bis 22

Die Arbeitsweise des Abschnitts (D) des Beispiels 1 wurde wiederholt, mit der Ausnahme, daß Verbindungen der folgenden Formeln (2-1) und (2-2) in den gleichen Molverhältnissen anstelle des 8-Chlor-5-Aminochinaldins und Phthalsäureanhydrid verwendet wurden, wie in Abschnitt (D) des Beispiels 1 ausgeführt.



----- (2-1)



----- (2-2),

worin R<sub>63</sub> und Y<sub>3</sub> wie in Tabelle 1 gezeigt sind.

Dem erhaltenen imidierten Chinaldinderivat wurde eine Verbindung der Formel

709834/0975

Tabelle 1

Bei- spiel	R <sub>63</sub>	Y <sub>3</sub>	X <sub>4</sub>	charakterist. IR-Absorp- tionen (KBr) /cm <sup>-1</sup> /	$\lambda_{\text{max}}$ /nm/ in DMF
2	Cl	3,4,5,6-Tetrachlor- 1,2-phenylen	Cl	1780, 1727, 1687, 1627	429
3	"	3,4,5,6-Tetrabrom- 1,2-phenylen	Br	1783, 1727, 1687, 1627	431
4	"	3,4,5,6-Tetrachlor- 1,2-phenylen	"	1780, 1730, 1687, 1627	435
5	"	3,4,5,6-Tetrabrom- 1,2-phenylen	Cl	1780, 1737, 1693, 1633	442
6	"	4-Brom-1,8- naphthylen	"	1706, 1673, 1627	426
7	"	5,6,7,8-Tetrabrom- 2,3-naphthylen	"	1787, 1733, 1693, 1637	429
8	"	5,8-Dibrom-2,3- naphthylen	"	1780, 1733, 1686, 1633	429
9	"	2,3-Naphthylen	"	1790, 1723, 1693, 1633	427
10	"	1,8-Naphthylen	"	1700, 1673, 1627	425
11	Br	1,2-Phenylen	"	1790, 1735, 1695, 1635	427

709834/0975

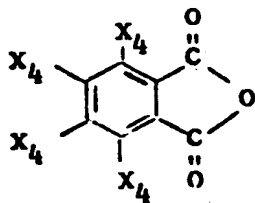
2706872

- 39 -



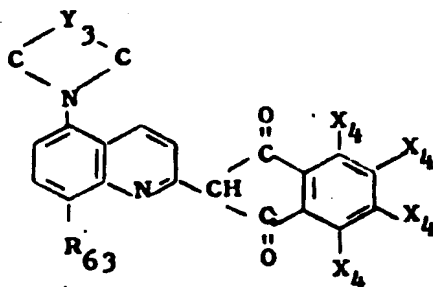
- 34 -

- 40 -



----- (2-3)

(in der  $X_4$  wie in Tabelle 1 definiert ist) im gleichen Molverhältnis wie das Tetrachlorphthalsäureanhydrid gemäß Abschnitt (E) des Beispiels 1 zugesetzt. Durch Wiederholen der gleichen Arbeitsweise, wie sie in den Abschnitten (E) und (F) des Beispiels 1 ausgeführt wurde, wurden gelbe Verbindungen erhalten. Die Ergebnisse der IR-spektroskopischen Analyse und die maximalen Absorptionswellenlängen ( $\lambda_{\max}$ ) ihrer sichtbaren Spektren waren wie in Tabelle 1 angegeben. Daher wurden die erhaltenen Verbindungen zu Verbindungen der Formel



(in der  $X_4$ ,  $Y_3$  und  $R_{63}$  wie in Tabelle 1 gezeigt sind) bestimmt.

#### Beispiel 12

172 g (1,0 Mol) 5-Amino-8-methylchinaldin und 715 g (2,5 Mol) 3,4,5,6-Tetrachlorphthalsäureanhydrid wurden in Gegenwart von 40 g wasserfreiem Zinkchlorid in 2.000 g 1,2,4-Trichlorbenzol unter Rückfluß beim Siedepunkt 3 h umgesetzt. Dann wurden

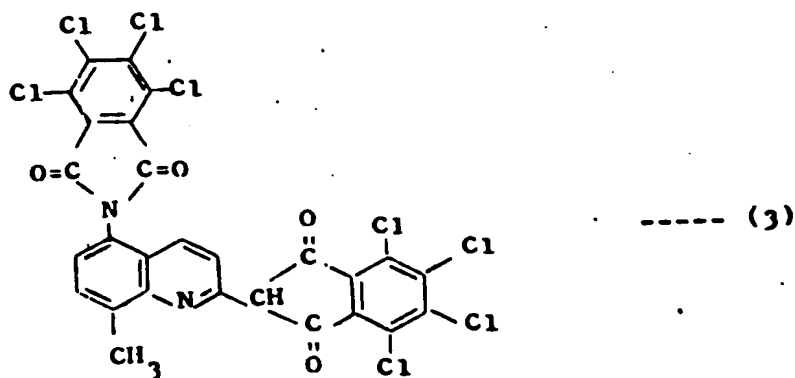
- 38 -

41.

500 g Dimethylformamid zugesetzt und das Gemisch 1 h unter Rückfluß beim Siedepunkt gerührt.

Das Reaktionsgemisch wurde bei 120°C filtriert. Das abgetrennte gelbe Reaktionsprodukt wurde mit 1.000 g Dimethylformamid und dann mit Äthanol gewaschen und getrocknet, um 597 g (0,84 Mol) einer pulverförmigen gelben Verbindung zu ergeben. Sie zeigte eine maximale Absorption bei 420 nm und 443 nm im sichtbaren Absorptionsspektrum in einer Dimethylformamidlösung. Im IR-Spektrum traten Absorptionen aufgrund der -CO-N-CO-Bindung bei 1725 cm<sup>-1</sup> und 1782 cm<sup>-1</sup> und Absorptionen aufgrund der -CO-C-CO-Bindung bei 1625 cm<sup>-1</sup> und 1685 cm<sup>-1</sup> auf.

Aus den obigen Daten wurde für das erhaltene Produkt die folgende Strukturformel (3) bestimmt:



Die Werte der Elementaranalyse des Produkts für C<sub>27</sub>H<sub>8</sub>O<sub>4</sub>N<sub>2</sub>Cl<sub>8</sub> waren wie in Tabelle 2.

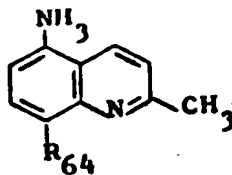
Tabelle 2

	C	H	N	Cl
gef. (%)	46,22	1,12	4,04	38,98
ber. (%)	45,80	1,14	3,96	40,06

709834/0975

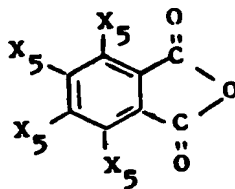
Beispiele 13 bis 15

Beispiel 12 wurde wiederholt, mit der Ausnahme, daß anstelle des 5-Amino-8-methylchinaldins und Tetrachlorphthalsäureanhydrids Verbindungen der Formeln



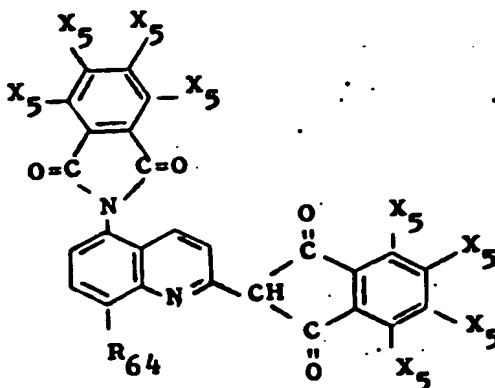
----- (4-1)

und



----- (4-2)

(in denen  $R_{64}$  und  $X_5$  wie in Tabelle 3 angegeben sind) in den gleichen Molverhältnissen wie in Beispiel 12 verwendet wurden, wodurch pulverförmige gelbe Verbindungen anfielen. Die IR-Absorptionspektren und die maximalen Wellenlängen ( $\lambda_{\max}$ ) ihrer sichtbaren Spektren waren wie in Tabelle 3 gezeigt. Aus diesen Daten wurde für die erhaltenen Verbindungen die folgende Strukturformel (4-3) bestimmt:



----- (4-3)

- 37 -

.43.

(worin  $R_{64}$  und  $X_5$  wie in Tabelle 3 gezeigt sind).

Tabelle 3

Beispiel	$R_{64}$	$X_5$	charakteristische IR-Absorptionen (KBr) $[\text{cm}^{-1}]$	$\lambda_{\text{max}}/\text{nm}/$ in DMF
13	$\text{CH}_3$	Br	1778, 1732, 1690, 1630	422
14	$\text{OCH}_3$	Cl	1775, 1730, 1690, 1635	422
15	$\text{C}_2\text{H}_5$	Cl	1790, 1730, 1690, 1630	423

Beispiel 16

172 g (1,0 Mol) 5-Amino-8-methylchinaldin und 464 g (1,0 Mol) 3,4,5,6-Tetrabromphthalsäureanhydrid wurden in 2.000 g Trichlorbenzol 2 h unter Rückfluß umgesetzt, um 532 g (0,86 Mol) 8-Methyl-5-(3,4,5,6-tetrabromphthalimido)-chinaldin zu ergeben. 369 g (1,29 Mol) Tetrachlorphthalsäureanhydrid und 2.000 g  $\alpha$ -Chlornaphthalin wurden zugesetzt, und das Gemisch wurde 2 h unter Rückfluß umgesetzt. Das Produkt wurde durch Heißfiltration bei  $120^\circ\text{C}$  gesammelt und in 1.000 g  $\alpha$ -Chlornaphthalin dispergiert, und das Gemisch wurde unter Rühren erwärmt, um das Produkt zu waschen. Nach Heißfiltration wurde das Produkt mit Äthanol gewaschen und getrocknet, um 671 g (0,75 Mol) einer gelben Verbindung zu ergeben.

Die maximale Absorptionswellenlänge ihres sichtbaren Absorptionsspektrums in einer Dimethylformamidlösung war 421 nm, und in ihrem IR-Absorptionsspektrum (KBr) wurden der -CO-N-CO-Bindung zuzuschreibende Absorptionen bei  $1732\text{ cm}^{-1}$  und  $1780\text{ cm}^{-1}$  und der -CO-C-CO-Bindung zuzuschreibende Absorptionen bei  $1630\text{ cm}^{-1}$  und  $1690\text{ cm}^{-1}$  beobachtet.

Die Werte der Elementaranalyse waren wie folgt:

709834/0975

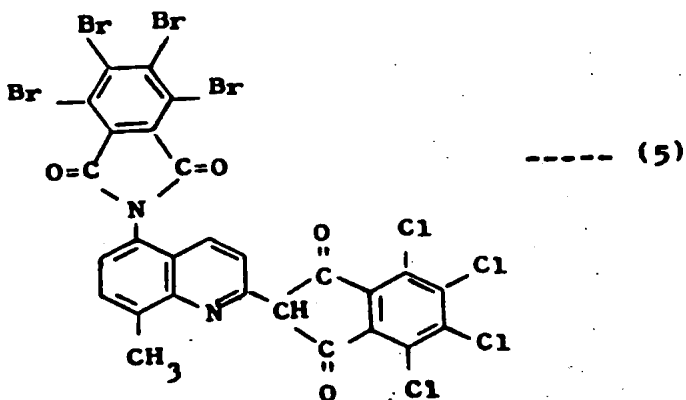
2706872

- 38 -

- 44 -

	C	H	N	Halogen
gef. (%)	36,49	0,95	3,04	51,60
ber. (%)	36,61	0,91	3,16	52,10

Aufgrund der vorstehenden Daten wurde diesem Produkt die folgende Strukturformel (5) zugeordnet.



#### Beispiele 17 bis 25

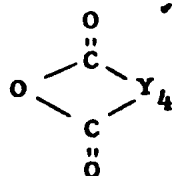
Gelbe Verbindungen wurden hergestellt, indem Beispiel 16 wiederholt wurde, mit der Ausnahme, daß eine Verbindung der Formel



(worin R<sub>65</sub> wie in Tabelle 4 gezeigt ist) anstelle von 5-Amino-8-methylchinaldin verwendet wurde; eine Verbindung der Formel

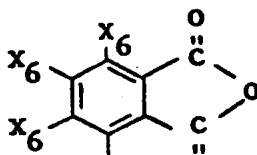
709834/0975

2706872



----- (6-2)

(worin  $Y_4$  wie in Tabelle 4 gezeigt ist) anstelle von Tetra-  
bromphthalsäureanhydrid, und eine Verbindung der Formel



----- (6-3)

ERROR: ioerror  
OFFENDING COMMAND: image

STACK:

-savelevel-